

平成 21 年 6 月 4 日現在

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2006～2008

課題番号：18684020

研究課題名(和文) 強相関電子系における新しい量子液体

研究課題名(英文) Novel Quantum Liquids in Strongly Correlated Electrons

研究代表者

中辻 知 (NAKATSUJI SATORU)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：70362431

研究成果の概要：

新しい量子液体として超伝導、非フェルミ液体、スピン液体を取り上げ、以下の研究を行ってきた。

- (1) 新物質 β -YbAlB₄を開発し、純良単結晶の育成に成功し、この物質が Yb 化合物の重い電子系として初の超伝導体であり、転移点直上で明瞭な非フェルミ液体性を示すことを明らかにした。超伝導特性からスピン揺らぎによる異方的超伝導が示唆される。
- (2) 三角格子磁性体 NiGa₂S₄ については自らの物質合成と物性測定、共同研究による NMR、 μ SR 実験から 10 K での明確な相転移を経て低温で MHz 程度の揺らぎをもつ粘性の高いスピン液体状態が形成される可能性を見出した。2 K 以下のスピン凍結状態で現れる比熱の T^2 則が不純物スピンサイズの偶奇性に依存することを発見した。これは比熱のコヒーレントな振る舞いに対する量子揺らぎの重要性を示唆する。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006 年度	17,100,000	5,130,000	22,230,000
2007 年度	4,000,000	1,200,000	5,200,000
2008 年度	2,300,000	690,000	2,990,000
年度			
年度			
総計	23,400,000	7,020,000	30,420,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：量子液体、非フェルミ液体、超伝導、スピン液体、スピングラス

1. 研究開始当初の背景

マクロな量子効果の典型である量子液体を

新しい系で実現することは、凝縮系物理学の重要な課題の一つである。中でも強相関電子

系においては、(1) 従来のフェルミ液体金属論の枠には納まらない非フェルミ液体、(2) フォノン以外の機構によるエキゾチック超伝導、(3) スピン自由度によるスピン液体などが、新しい量子液体として期待される。今後、その実験的確立には典型例の集中的研究が重要となる。

2. 研究の目的

新しい量子液体として乱れに伴わない非フェルミ液体・エキゾチック超伝導・スピン液体の可能性を追究し、極低温物性研究を通じ典型例を確立することを目的とする。そのなかでも、具体的には我々が新しく開発した β -YbAlB₄ の非フェルミ液体と超伝導の可能性の解明に重点を置く。*f* 電子系の量子臨界現象は、臨界点近傍に現れる異方的な超伝導、顕著な非フェルミ液体性から注目される。しかし、常圧、ゼロ磁場近傍で量子臨界点を実現する高純度物質はこれまで少なく、決定的な実験が難しかった。さらに、Yb 系重い電子系での超伝導探索はこれまで 20 年以上続けられてきたが、その発見は今日まで報告がなかった。

我々は、ごく最近、残留抵抗が 0.2 $\mu\Omega\text{cm}$ 以下で、室温抵抗との比が 300 以上もの高純度な新物質 YbAlB₄ の単結晶育成に成功した。抵抗・磁化率測定から常圧・ゼロ磁場で量子臨界点に位置することが分かっている。量子臨界現象を磁場、圧力でコントロールし、その詳細な極低温測定から、臨界点近傍での非フェルミ液体状態の特性を解明する。さらに、純良な単結晶での超伝導の可能性を追究する。

次に幾何学的にフラストレートした $S=1$ 擬二次元三角格子系 NiGa₂S₄ での低温スピン状態の解明を目指す。この系では 10 K 以下でバ

ルクのスピン凍結があるが、0.35 K まで長距離磁気秩序がない。さらに、低温で比熱の T^2 則で代表されるマクロなコヒーレンスを持つ状態が現れる。これらの事実は新しい二次元のスピン状態を強く示唆する。その基底状態を確定するため、不純物効果の研究、また、スピンの動的性質を明らかにする研究を進める。

3. 研究の方法

(1) NiGa₂S₄ の多結晶は固相反応法により、単結晶は化学気相輸送法により作成した。YbAlB₄ はフラックス法により、単結晶育成を行った。

(2) 希釈冷凍機を用いることで、低温 40 mK までの高精度抵抗測定を交流抵抗ブリッジを用いて行った。また、300 mK までの比熱測定は熱緩和法により 9 T の磁場まで行った。

(3) NQR、 μSR 分光、ESR はそれぞれ、京都大学理学研究科の石田教授のグループ、米国カリフォルニア大学の D. E. MacLaughlin 教授のグループ、さらに、大阪大学の萩原教授のグループらと共同で行った。

4. 研究成果

Ce 化合物に代表される重い電子系は、量子臨界点近傍の磁気揺らぎによる超伝導が最初に発見された舞台であり、以来、超伝導研究の格好の研究対象を提供してきた。一方、この Ce 系 (*4f* 電子が一つ) と電子・ホール対称の関係にある Yb 系 (*4f* ホールがひとつ) において重い電子系超伝導の報告がないことは長年の謎であった。その中、我々は新物質 β -YbAlB₄ の開発を通じて、Yb 系での重い

電子超伝導が実際に可能であることを世界で初めて実験的に証明した(図1)。また、その超伝導が強磁性の揺らぎを伴う非フェルミ液体から現れることを明らかにした(図1)。このような超伝導の例はこれまで報告がなく、新奇なものである。また、超伝導は平均自由行程が 0.1 μm 以上の極めて純良試料でのみ発現し、異方的なものであることを示唆する(図1)。圧力実験からは量子相転移を経て、2 GPa 以上の静水圧下で Yb 系では最高の 30 K の転移温度を持つ磁気相転移が現れることを見出した。

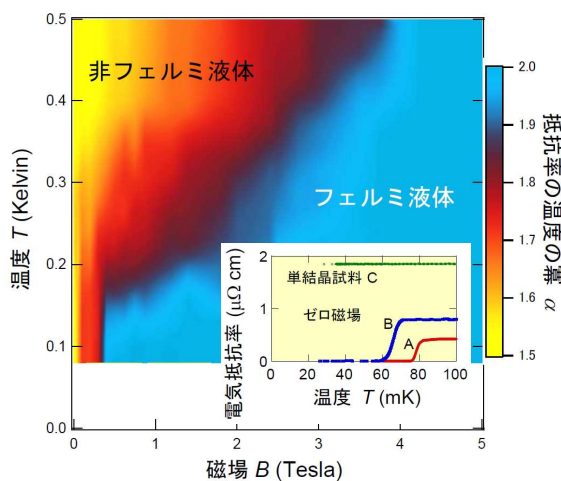


図1 抵抗率の温度の冪乗則から作成した状態図。ゼロ磁場近傍に非フェルミ液体状態が広がる。挿入図は超伝導転移温度が残留抵抗率の上昇とともに下がることを示す。(中辻 *et al.*, Nature Phys. (2008). 久我 *et al.*, Phys. Rev. Lett. (2008).)

次に、 $S=1$ の 2 次元三角格子系 NiGa_2S_4 の磁性及び非磁性不純物効果の研究の結果、 NiGa_2S_4 の低温比熱の T^2 の振る舞いは単純な 2 次元スピン波の励起だけでなく、整数スピンの特有な量子効果によることが示唆された。また、共同研究による μSR と ESR の測定から、この低温状態は、MHz 程度のスローダイナミクスを伴っているだけでなく、通常

の磁気転移とは異なる新しい 2 次元の磁気相転移を経て現れることが分かった。図 2 に概念的に示すように 10 K における明確な相転移を経て現れるこの低温状態は、MHz 程度のスピン揺らぎを伴う“粘性の高いスピン液体”である可能性が高い。この新しい相転移は Z_2 -vortex の対形成による可能性がある。

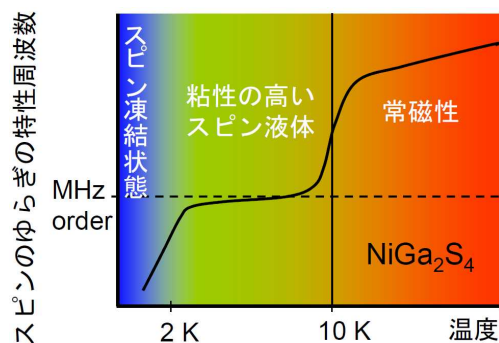


図2 帯磁率・NMR・ μSR の実験結果から得られた NiGa_2S_4 のスピン揺らぎの特性周波数の温度依存性の概念図。(南部, 中辻 *et al.*, Phys. Rev. Lett. (2008). 南部, 中辻 *et al.*, preprint (2008). 竹谷, 石田, *et al.* Phys. Rev. B (2008). MacLaughlin *et al.* Phys. Rev. B (2009).)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 34 件)

1. H. Yamaguchi, S. Kimura, M. Hagiwara, Y. Nambu, S. Nakatsuji, Y. Maeno, and K. Kindo, High-field electron spin resonance in the two-dimensional triangular-lattice antiferromagnet NiGa_2S_4 , Physical Review B, 査読有, Volume 78, 2008, 180404(R)/1-4.

2. D. E. MacLaughlin, Y. Nambu, S. Nakatsuji, R. H. Heffner, Lei Shu, O. O. Bernal, and K. Ishida, Unconventional spin freezing and fluctuations in the frustrated antiferromagnet NiGa_2S_4 , Physical Review B, 査読有, Volume 78, 2008, 220403(R)/1-4.

3. Y. Nambu, S. Nakatsuji, Y. Maeno, E.K. Okudžeto, and J.Y. Chan, Spin dependent

impurity effects in the 2D frustrated magnetism of NiGa_2S_4 , Physical Review Letters, 査読有, Volume 101, 2008, 207204/1-4.

4. K. Kuga, Y. Karaki, Y. Matsumoto, Y. Machida, and S. Nakatsuji, Superconducting properties of the non-Fermi-liquid system YbAlB_4 , Physical Review Letters, 査読有, Volume 101, 2008, 137004/1-4.

5. S. Nakatsuji, K. Kuga, Y. Machida, T. Tayama, T. Sakakibara, Y. Karaki, H. Ishimoto, E. Pearson, G. G. Lonzarich, H. Lee, L. Balicas, and Z. Fisk, Superconductivity and quantum criticality in the heavy-fermion system YbAlB_4 , Nature Physics, 査読有, Volume 4, 2008, 603-607.

6. Y. Nambu, M. Ichihara, Y. Kiuchi, S. Nakatsuji and Y. Maeno, Synthesis and characterization of the quasi-two-dimensional triangular antiferromagnets $\text{Ni}_{1-x}\text{M}_x\text{Ga}_2\text{S}_4$ (M = Mn, Fe, Co, Zn), Journal of Crystal Growth, 査読有, Volume 310, 2008, 1881-1885.

7. Hideo Takeya, Kenji Ishida, Kentaro Kitagawa, Yoshihiko Ihara, Keisuke Onuma, Yoshiteru Maeno, Yusuke Nambu, Satoru Nakatsuji, Douglas E. MacLaughlin, Akihiko Koda, and Ryosuke Kadono, Spin dynamics and spin freezing behavior in the two-dimensional antiferromagnet NiGa_2S_4 revealed by Ga-NMR, NQR and μSR measurements, Physical Review B, 査読有, Volume 77, 2008, 054429/1-13.

8. S. Nakatsuji, H. Tonomura, K. Onuma, Y. Nambu, O. Sakai, Y. Maeno, R. T. Macaluso, and Julia Y. Chan, Spin Disorder and Order in Quasi-2D Triangular Heisenberg Antiferromagnets: Comparative Study of FeGa_2S_4 , $\text{Fe}_2\text{Ga}_2\text{S}_5$, and NiGa_2S_4 , Physical Review Letters, 査読有, Volume 99, 2007, 157203/1-4.

9. K. Takubo, T. Mizokawa, J.-Y. Son, Y. Nambu, S. Nakatsuji, Y. Maeno, Unusual Superexchange Pathways in an NiS_2 Triangular Lattice with Negative Charge-Transfer Energy, Physical Review Letters, 査読有, Volume 99, 2007, 037203/1-4.

10. Robin T. Macaluso, Satoru Nakatsuji, Kentaro Kuga, Evan Lyle Thomas, Yo Machida, Yoshiteru Maeno, Zachary Fisk, and Julia Y. Chan, Crystal Structure and Physical Properties of a New Polymorph of LnAlB_4 (Ln = Yb, Lu), Chemistry of Materials, 査読有, Volume 19, 2007, 1918-1922.

〔学会発表〕(計 51 件)

1. Satoru Nakatsuji, Quantum Criticality and Superconductivity of the Heavy Fermion System YbAlB_4 , American Physical Society March Meeting, Symposium on New Aspect of Heavy Fermion Superconductors, March 17, 2009, Pittsburg, USA

2. Satoru Nakatsuji, Geometrical Frustration Effects in Phase transition and Transport Phenomena, Highly Frustrated Magnetism 2008, August 9, 2008, Braunschweig, Germany

3. Satoru Nakatsuji, Superconductivity and Non-Fermi-Liquid Behavior in YbAlB_4 , International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, August 18, 2008, Buzios/Rio, Brazil

4. Satoru Nakatsuji, Exotic Freezing Phenomena in Metallic and Insulating Frustrated Magnets, International Workshop "Topological Aspects of Solid State Physics", June 20, 2008, ISSP, Univ. of Tokyo

5. Satoru Nakatsuji, Unconventional Spin Freezing and Transport phenomena due to Geometrical Frustration, KIAS Workshop on "Quantum Magnetism", December 18, 2007, Seoul, Korea

6. Satoru Nakatsuji, Spin Disordered States in Geometrically Frustrated Lattices, International conference of crystal growth 15, August 14, 2007, Salt Lake City, Utah, USA

〔産業財産権〕

取得状況 (計 1 件)

工業所有権の名称: YbAlB_4 を有してなる磁気冷凍作業物質及びその製造方法、並びにそれを用いた磁気冷凍方法及び磁気冷凍装置

発明者: 中辻知, 榊原俊郎, 前野悦輝

権利者：国立大学法人東京大学，前野悦輝
工業所有権の種類、番号：特許出願 出願番
号：特願 2007 -094705
出願年月日 平成 19 年 3 月 30 日
取得年月日 （公開差支え 有）

6 . 研究組織

(1)研究代表者

中辻 知 (NAKATSUJI SATORU)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：70362431

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし